



⑮ **BUNDESREPUBLIK  
DEUTSCHLAND**



**DEUTSCHES  
PATENT- UND  
MARKENAMT**

⑫ **Offenlegungsschrift**  
⑩ **DE 199 04 835 A 1**

⑤① Int. Cl.<sup>7</sup>:  
**C 09 J 163/10**  
C 09 J 5/02  
C 08 K 5/37

⑳ Aktenzeichen: 199 04 835.5  
㉔ Anmeldetag: 8. 2. 1999  
㉔③ Offenlegungstag: 10. 8. 2000

**DE 199 04 835 A 1**

⑦① Anmelder:  
Henkel KGaA, 40589 Düsseldorf, DE

⑦② Erfinder:  
Kirsten, Christian, Dr., 40789 Monheim, DE;  
Ferencz, Andreas, Dr., 40223 Düsseldorf, DE;  
Hirhammer, Michael, Dr., 69251 Gaiberg, DE

**Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen**

Prüfungsantrag gem. § 44 PatG ist gestellt

⑤④ **Lösbare Klebstoffe**

⑤⑦ Auf der Basis von Bindemitteln, bei denen zumindest eine Aufbaukomponente Di- oder Polysulfidbindungen enthält, lassen sich lösbbare Klebstoffzusammensetzungen formulieren. Diese Klebstoffe sind nach herkömmlichen Methoden entweder als Zweikomponentenklebstoffe oder einkomponentige hitzehärtende Klebstoffe aushärtbar. Derartige Klebeverbindungen lassen sich mit undispergierten, bei Raumtemperatur inerten Spaltungsagentien auf der Basis von Mercaptoverbindungen oder auf der Basis von Reduktionsmitteln ggf. unter Hinzufügung von Katalysatoren wieder lösen. Dadurch wird es möglich, verklebte Bauteile auf chemischem Wege in der Klebefuge wieder zu trennen.

**DE 199 04 835 A 1**

## Beschreibung

Die vorliegende Erfindung betrifft Klebstoff-Zusammensetzungen auf der Basis von Bindemitteln, die Di- oder Polysulfidbindungen enthalten und zur Herstellung von lösbaren Klebeverbindungen geeignet sind. Ein weiterer Gegenstand der vorliegenden Erfindungen sind Spaltreagenzien zum Lösen von Klebeverbindungen sowie ein Verfahren zum Herstellen und Lösen von Klebeverbindungen.

In vielen Industriezweigen, insbesondere in der metallverarbeitenden Industrie wie z. B. der Fahrzeugindustrie, im Nutzfahrzeugbau sowie deren Zulieferindustrien oder auch bei der Herstellung von Maschinen und Haushaltsgeräten oder auch in der Bauindustrie werden zunehmend gleiche oder verschiedene metallische und nicht-metallische Substrate klebend bzw. abdichtend miteinander verbunden. Dieser Art des Fügens von Bauteilen ersetzt in zunehmenden Maße die klassischen Fügeverfahren wie Nieten, Schrauben oder Schweißen, weil das Kleben/Abdichten eine Vielzahl von technologischen Vorteilen bietet. Im Gegensatz zu den traditionellen Fügeverfahren wie Schweißen, Nieten, Schrauben ist das Lösen und Separieren von geklebten Bauteilen bisher noch nicht befriedigend gelöst.

Die EP-A-735121 beschreibt einen Klebfolien-Abschnitt für eine rückstandsfreie und beschädigungslose und wieder lösbare Verklebung bestehend aus einer doppelseitig klebenden Klebefolie mit einem aus der Klebefolie herausragenden Anfasser, an dem durch Ziehen in Richtung der Verklebungsebene die Verklebung lösbar ist. Dieses Verfahren ist jedoch nur anwendbar, wenn die Klebstoffschicht der Klebefolie ein Haftklebstoff ist. Mit derartigen Klebeverbindungen lassen sich jedoch nur geringe Zug- bzw. Schälfestigkeiten erreichen, so daß dieses Verfahren nur zum Fixieren von kleinen Gegenständen wie Haken und dergleichen im Haushaltsbereich anwendbar ist.

Die DE-A-42 30 116 beschreibt eine Klebstoffzusammensetzung enthaltend eine Abmischung eines aliphatischen Polyols mit einem aromatischen Dianhydrid. Diese Klebstoffzusammensetzung ermöglicht ein Auflösen der Verklebung in wäbrig alkalischen Systemen, konkret genannt werden Sodalösungen oder Alkalilaugen. Es wird vorgeschlagen diese wäbrig alkalisch löslichen Klebstoffe zur rationellen Herstellung von Magneteilen und anderen Kleinteilen zu verwenden, wobei der Klebstoff nur zur Herstellung von Hilfsklebungen bei der Materialbearbeitung verwendet werden soll. Sehr ähnliche Klebstoffe sind auch als Etikettierklebstoffe bekannt, die ein Ablösen der Etiketten im wäßrigen oder wäbrig alkalischen Milieu bei Getränkeflaschen und ähnlichen Gebinden erlauben.

Die DE-A-43 28 108 beschreibt einen Kleber für Bodenbeläge und ein Verfahren zum Lösen dieser verklebten Bodenbeläge mit Hilfe von Mikrowellenenergie. Dazu soll der Kleber elektrisch leitfähig sein und durch ein Mikrowellengerät erweichbar sein. Konkret vorgeschlagen werden lösungsmittelfreie Kontaktkleber auf Basis von (wäßrigen) Polymerdispersionen, die Kupferpulver oder Aluminiumpulver enthalten. Gemäß der Lehre dieser Schrift sollen die verklebten Bodenbelagsstücke zum Lösen der Klebeverbindung in ein Mikrowellengerät gelegt werden, damit die Klebeschicht erweicht werden kann, so daß man die Bodenbelagsstücke nach dem Erweichen der Kleberschicht manuell abziehen kann.

Die WO 94/12582 beschreibt einen Haftkleber auf der Basis einer Mischung aus einer wäßrigen Polymerdispersion und einem in einem organischen Lösungsmittel gelösten Klebstoff sowie Klebrigmachern und Fettigungsmitteln. Dieser Haftklebstoff hat in einem breiten Temperaturbereich eine konstante Klebkraft und ermöglicht das mechanische Trennen der Klebeverbindungen. Angegeben wird, daß sich diese Klebeverbindungen zum Verkleben von Dämm- und/oder Zierflächenteilen wie z. B. Dämm-Materialien oder Kunststoff-Folien eignet.

Die EP-A-521825 beschreibt eine lösbare Klebeverbindung, bei welche die miteinander verbundenen Teile mittels einer dazwischen eingebrachten Kleberraupe gefügt sind. Diese Kleberraupe enthält ein flächiges thermoplastisches Trennelement. Beim Erwärmen der Klebeverbindung durch Strom oder Strahlungszufuhr wird diese thermoplastische Trennschicht Erweicht, so daß die miteinander verbundenen Anteile mechanisch voneinander getrennt werden können. Konkret schlägt die EP-A-521825 vor, derartige lösbare Klebeverbindungen bei der Direktverglasung im Fahrzeugbau einzusetzen.

Die DE-A-195 26 351 beschreibt ein Lösegel für Lacke, Farben und Kleber auf der Basis organischer Lösungsmittel unter Zusatz von Netz-Verdickungs- und anderen üblichen Mitteln. Als konkretes Anwendungsfeld werden die Verwendung als Abbeizmittel bei der Entschichtung von 2 K-Lacken genannt. Obwohl erwähnt wird, daß derartige Mischungen auch zum Einsatz bei 2 K-Klebern geeignet sei, fehlen jedwede konkreten Angaben zum Lösen derartiger Klebeverbindungen. In ähnlicher Weise beschreibt die WO 87/01724 eine Zusammensetzung zur Entfernung von ausgehärteten Polysulfiddichtstoffen oder Beschichtungen. Hierbei werden in einem Lösungsmittel oder Lösungsmittelgemisch bestehend aus Dimethylformamid oder Dimethylacetamid oder deren Mischung mit aromatischen Lösungsmitteln wie Toluol oder Xylol ein Alkalimetall- oder Ammoniumthiolat auf der Basis von Alkyl- oder Phenylthiolaten gelöst und auf ausgehärtete Polysulfiddichtstoffe oder Beschichtungsmaterialien aufgetragen, um diese anschließend von ihren Substraten, wie z. B. Flugzeugtanks entfernen zu können. Angaben zum Lösen von Klebeverbindungen werden nicht gemacht.

Die WO 97/00283 beschreibt ein Verfahren zur Wiederaufarbeitung von ausgehärteten oder teilweise ausgehärteten Polysulfid- und/oder Polymercaptan-Zusammensetzungen. Hierbei werden ausgehärtete Polysulfid-Materialien in einer Lösung eines Depolymerisationsmittels auf der Basis von Vulkanisationsbeschleunigern in einer nicht flüchtigen Flüssigkeit depolymerisiert, um anschließend als Bestandteil einer Härterkomponente von 2-komponentigen Polysulfid- und/oder Polymercaptan-Klebstoffen oder Beschichtungsmaterialien wiederverwendet zu werden. Hinweise auf ein Lösen von Klebeverbindungen nach dieser Methode werden nicht offenbart.

In der Arbeit "Reversible Crosslinking in Epoxy Resins", Journal of Applied Polymer Science, 39, 1439 bis 1457 (1990) beschreiben V.R. Sastri und G.C. Tesoro Epoxyharze mit verschiedenen Epoxyäquivalenten, die mit 4,4'-Dithioanilin vernetzt sind. Dort wird vorgeschlagen, das vernetzte Harz zu 600 µm großen Teilchen zu malen. Dieses feingemahlene Pulver wird dann in einer Lösung aus Diglyme, Salzsäure und Tributylphosphin unter Rückfluß gekocht, bis das gemahlene Harz aufgelöst ist. Analoge Offenbarungen werden in der US-A-4,882,399 von den gleichen Autoren gemacht. Konkrete Angaben über lösbare Klebeverbindungen fehlen in beiden Dokumenten.

Die im vorgenannten Stand der Technik beschriebenen lösbaren Klebeverbindungen sind jeweils nur einem sehr eng begrenzten Anwendungsfeld einzusetzen, es fehlen insbesondere Klebstoff-Zusammensetzungen, die die leichte und schnelle Lösbarkeit bzw. einfache Entfernbarkeit der Klebeverbindung mit hoher Festigkeit der Bindung und Stabilität

gegenüber äußeren Einflüssen miteinander vereinen.

Die noch unveröffentlichte PCT/EP 98/04667 beschreibt Klebstoffe, bei denen zumindest eine Aufbaukomponente Di- oder Polysulfidbindungen enthält und die nach dem Aushärten durch Auftragen von Lösungen von Spaltungsagenzien auf der Basis von Mercaptoverbindungen wieder gelöst werden können. Dadurch wird es möglich, verklebte Bauteile auf chemischem Wege in der Klebfuge wieder zu trennen. Gemäß der Lehre dieser Schrift kann das Spaltungsagens auch in einer bei Raumtemperatur inerten Form der Klebstoff-Formulierung zugemischt werden, wobei die Spaltung nach Aktivierung des Reagenzes bei erhöhter Temperatur erfolgen kann. Konkrete Ausbildungen dieser inerten Form des Spaltungsagenzes werden nicht genannt. Obwohl die Verwendung von lösungsmittelhaltigen Spaltungsagenzien es erlaubt, Klebeverbindungen wieder zu lösen, ist es wünschenswert, auf lösungsmittelhaltige Spaltungsagenzien verzichten zu können, da diese Vorgehensweise

- wegen der diffusionsbedingten Einwirkungszeit der Spaltungsagenzien sehr zeitraubend ist
- die Handhabung von lösungsmittelhaltigen Spaltungsagenzien aus Umweltschutzgründen vermieden werden sollte.

Es bestand also die Aufgabe, Klebstoffzusammensetzungen bereitzustellen, die sich bei Bedarf wieder lösen lassen und bei denen der Einsatz von extern aufgetragenen lösungsmittelhaltigen Spaltungsagenzien vermieden werden kann.

Die Lösung der Aufgabe ist den Patentansprüchen zu entnehmen. Sie beruht im wesentlichen in der Bereitstellung von Klebstoff-Zusammensetzungen auf der Basis von Bindemitteln, die mindestens eine Di- oder Polysulfidbindung pro Molekül enthalten und die in der Klebstoff-Zusammensetzung ein Spaltungsagens enthalten, das bei Raumtemperatur oder Gebrauchstemperatur inert ist, das bei geeigneter Aktivierung jedoch in der Lage ist, diese Di- oder Polysulfidbindungen zu lösen, um so ein Trennen der Fügeile zu ermöglichen.

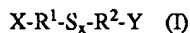
Hierbei bedeutet "bei Raumtemperatur oder Gebrauchstemperatur inert" in bezug auf das Spaltungsagens, daß dieses Spaltungsagens bei der Raumtemperatur bzw. der Gebrauchstemperatur der verklebten Einheit zwar in der Klebstoffmatrix dispergiert ist, jedoch in diesem Temperaturbereich keine Spaltung der Di- oder Polysulfidbindungen der Klebstoffmatrix bewirken können. Diese Spaltung und damit Lösung der Klebeverbindung soll vielmehr erst nach einem auslösenden Schritt, d. h. nach der Aktivierung des Spaltungsreagenzes erfolgen.

Ein weiterer Gegenstand der vorliegenden Erfindung ist ein Verfahren zum Herstellen und Lösen von Klebeverbindungen mit den folgenden wesentlichen Verfahrensschritten:

- Fügen und Verbinden der Teile mit Hilfe einer Klebstoffzusammensetzung, deren Bindemittel mindestens eine Aufbaukomponente enthält, die mindestens eine Di- oder Polysulfidbindung pro Molekül enthält. Dabei kann diese Klebstoffzusammensetzung ein einkomponentiges System sein, das der Anwender direkt ohne Vermischen von Komponenten applizieren kann. Das Klebstoffsystem kann jedoch auch aus 2 oder mehr getrennt zu lagernden Komponenten bestehen, die erst unmittelbar vor der Applikation miteinander vermischt werden.
- Aushärten des Klebstoffs bei Raumtemperatur, d. h. durch Reaktion der einzelnen Komponenten miteinander bei mehrkomponentigen Systemen oder durch Reaktion des einkomponentigen Systems mit Luftfeuchtigkeit und/oder Luftsauerstoff. Weitere Möglichkeiten des Aushärtens bestehen in der Zufuhr von Wärme, UV-Licht oder Elektronenstrahlen. Dabei richtet sich das Aushärtungsverfahren nach dem Vernetzungsmechanismus der Komponenten.
- Das Lösen der Klebeverbindung erfolgt durch das Aktivieren des in der Klebstoffmischung dispergierten Spaltungsreagenzes.
- Gegebenenfalls kann dieser Trennungsprozeß durch ein Erwärmen des verklebten Bauteils oder der Verklebungsstelle weiter beschleunigt werden.

Gegebenenfalls kann das Trennen der verklebten Bauteile durch mechanische Beanspruchung der Klebefuge weiter beschleunigt werden.

Wesentlicher Bestandteil der Aufbaukomponenten des erfindungsgemäßen Bindemittels sind also Verbindungen, die mindestens eine Di- oder Polysulfidbindung der allgemeinen Formel



enthalten. Hierin sind  $R^1$  und  $R^2$  zweiwertige Alkyl und/oder Aryl-Reste, im einfachsten Fall also eine  $C_2$  bis  $C_8$ -Alkylengruppe oder ein zweiwertiger aromatischer Rest wie z. B. 1,2-, 1,3- oder 1,4-Phenyl, Diphenyl, Naphthyl oder ähnliche aromatische Reste. X und Y können unabhängig voneinander jede zur Reaktion befähigte funktionelle Gruppe bedeuten, bevorzugt sind primäre oder sekundäre Aminogruppen, Hydroxylgruppen, Carboxylgruppen. Außerdem können X und/oder Y Mercaptogruppen, Epoxygruppen, Isocyanatgruppen, Alkoxysilylgruppen oder auch olefinische Doppelbindungen sein, im letztgenannten Fall kann  $R^1$  und/oder  $R^2$  durch eine kovalente Bindung ersetzt sein. x ist eine ganze Zahl im Bereich zwischen 2 und 8, besonders bevorzugt ist 2.

Beispiele für Aufbaukomponenten gemäß Formel I, die olefinische Doppelbindungen enthalten, können auf folgende Weise hergestellt werden: In einem ersten Schritt werden Dithiodialkohole oder Dithiodiamine mit Diisocyanaten so umgesetzt, daß Isocyanat-terminierte Disulfidverbindungen resultieren, d. h. die Diisocyanatkomponente wird in einem stöchiometrischen Überschuß gegenüber der Dithiodialkohol- oder Dithiodiaminkomponente eingesetzt. In einer zweiten Stufe werden diese NCO-terminierten Disulfidverbindungen mit Hydroxyalkylacrylaten oder Hydroxyalkylmethacrylaten umgesetzt, so daß (Meth)acrylat-terminierte Disulfidverbindungen entstehen. Beispiele für die einzusetzenden Hydroxyalkyl(meth)acrylate sind die entsprechenden Ethyl-, Propyl- oder Butylverbindungen. Die so erhaltenen (Meth)acrylat-terminierten Disulfidverbindungen können wie gewohnt mit entsprechenden copolymerisierbaren Verbindungen kombiniert werden und radikalisch bzw. ionisch ausgehärtet werden. Beispiele für derartige an sich bekannte copolymerisierbare Verbindungen sind in der DE-C 195 45 123 Spalte 5 Zeile 24 bis 47 genannt. Die dort genannten Co-

monomeren sind ausdrücklich Bestandteil dieser Erfindung.

In analoger Weise können aus den NCO-terminierten Disulfid- bzw. Polysulfidverbindungen durch Umsetzung mit Hydroxygruppen-haltigen Epoxyverbindungen, Epoxid-funktionalisierte Di- bzw. Polysulfide hergestellt werden. Beispiele für derartige Hydroxy-funktionelle Epoxide sind das Glycidol sowie die diversen Glycidylether des Bisphenols A, die in der Regel freie Hydroxygruppen tragen.

Analog ist es möglich durch Umsetzung von COOH-terminierten Disulfid- bzw. Polysulfidverbindungen mit di- bzw. polyfunktionellen Epoxidverbindungen zu epoxidfunktionalisierten Di- bzw. Polysulfidverbindungen zu gelangen.

Durch Umsetzung mit aminofunktionellen Alkoxysilanen lassen sich aus den NCO-terminierten Di- oder Polysulfidverbindungen die entsprechenden Alkoxysilan-terminierten Produkte herstellen.

Ganz besonders bevorzugte Aufbaukomponenten gemäß Formel I sind Cystamin, Dithiodiethanol sowie Dithiodipropionsäure.

Als weitere Aufbaukomponente der erfindungsgemäßen Klebstoff-Zusammensetzung können eine oder mehrere Verbindungen der allgemeinen Formel

X-R<sup>3</sup>-Y (II)

Verwendung finden, wobei X und Y die oben angegebenen Bedeutungen haben können und R<sup>3</sup> ein mindestens zweiwertiger organischer Rest ist. Üblicherweise sind die Komponenten der Formel II sogenannte Prepolymere-Verbindungen mit einem Molekulargewichtsbereich zwischen 300 und 20.000, vorzugsweise zwischen 700 und 10.000.

Besonders bevorzugte Komponenten gemäß Formel II sind Epoxidharze, Isocyanatgruppen-haltige Polyurethan-Prepolymere, Novolak-Harze, Phenolharze oder ungesättigte Polyester. An die Stelle der Komponenten gemäß Formel II können jedoch auch die oben genannten copolymerisierbaren olefinisch ungesättigten Verbindungen treten.

Als Epoxidharze eignen sich hierbei eine Vielzahl von Polyglycidylethern von Polyolen wie Ethylenglykol, Dithylenglykol, Triethylenglykol, 1,2-Propylenglykol, 1,5-Pentandiol, 1,2,6-Hexantriol, Glycerin, 2,2-Bis(4-hydroxycyclohexyl)propan und Polyalkylenglycole wie Polypropylenglykol. Weiterhin eignen sich die Polyglycidylester von aliphatischen oder aromatischen Polycarbonsäuren, wie Oxalsäure, Succinsäure, Glutarsäure, Terephthalsäure, 2,6-Naphthalindicarbonsäure und Dimerfettsäure. Weitere geeignete Epoxyverbindungen sind die Polyglycidylether von Polyphenolen wie Bisphenol A, 1,1-Bis(4-hydroxyphenyl)ethan, 1,1-Bis(4-hydroxyphenyl)isobutan, 1,5-Dihydroxynaphthalin sowie Novolakharzen. Bevorzugte Epoxyverbindungen schließen höhermolekulare Harze wie die kettenverlängerten Diglycidylether des Bisphenol A, Diglycidylether des Dimerfettsäure-verlängerten Bisphenol A und Bisphenol A Glycidylether terminierte Polyetherpolyurethane ein. Weiterhin können die Addukte von Epoxidharzen mit carboxy-, amino- und/oder hydroxyfunktionellen Nitrilkauschuken (Hycar-Typen) als Epoxykomponente verwendet werden.

Die Isocyanatgruppen-haltigen Polyurethan-Prepolymere sind aufgebaut aus aromatischen, cycloaliphatischen oder aliphatischen Polyisocyanaten und Di- und/oder Polyolen.

Beispiele für geeignete aromatische Polyisocyanate sind:

Alle Isomeren des Toluylendiisocyanats (TDI) entweder in isomerenreiner Form oder als Mischung mehrerer Isomere, Naphthalin-1,5-Diisocyanat, Diphenylmethan-4,4'-Diisocyanat (MDI), Diphenylmethan-2,4'-Diisocyanat sowie Mischungen des 4,4'-Diphenylmethandiisocyanats mit dem 2,4'-Isomeren oder deren Mischungen mit höherfunktionellen Oligomeren (sogenanntes Roh-MDI). Beispiele für geeignete cycloaliphatische Polyisocyanate sind die Hydrierungsprodukte der vorgenannten aromatischen Diisocyanate wie z. B. das 4,4'-Dicyclohexylmethandiisocyanat (H<sub>12</sub>MDI), 1-Isocyanatomethyl-3-Isocyanato-1,5,5-Trimethyl-cyclohexan (Isophoron-Diisocyanat, IPDI), Cyclohexan-1,4-Diisocyanat, hydriertes Xylylen-Diisocyanat (H<sub>6</sub>XDI), m- oder p-Tetramethylxylylendiisocyanat (m-TMXDI, p-TMXDI) und Dimerfettsäure-Diisocyanat. Beispiele für aliphatische Polyisocyanate sind Hexan-1,6-Diisocyanat (HDI), 1,6-Diisocyanato-2,2,4-Trimethylhexan, 1,6-Diisocyanato-2,4,4-Trimethylhexan, Butan-1,4-Diisocyanat sowie 1,12-Dodecandiisocyanat (C<sub>12</sub>DI).

Als Di- und/oder Polyole eignen sich vorzugsweise die flüssigen Polyhydroxyverbindungen mit zwei bzw. drei Hydroxylgruppen pro Molekül, wie z. B. di- und/oder trifunktionelle Polypropylenglykole im Molekulargewichtsbereich von 200 bis 6000, vorzugsweise im Bereich von 400 bis 3000. Es können auch statistische und/oder Blockcopolymere des Ethylenoxids und Propylenoxids eingesetzt werden. Eine weitere Gruppe von vorzugsweise einzusetzenden Polyethern sind die Polytetramethylenglykole, die z. B. durch die saure Polymerisation von Tetrahydrofuran hergestellt werden, dabei liegt der Molekulargewichtsbereich der Polytetramethylenglykole zwischen 200 und 6000, vorzugsweise im Bereich von 400 bis 4000.

Weiterhin sind als Polyole die flüssigen Polyester geeignet, die durch Kondensation von Di- bzw. Tricarbonsäuren, wie z. B. Adipinsäure, Sebacinsäure, Glutarsäure, Azelainsäure Hexahydrophthalsäure oder Phthalsäure mit niedermolekularen Diolen bzw. Triolen wie z. B. Ethylenglykol, Propylenglykol, Diethylenglykol, Triethylenglykol, Dipropylenglykol, 1,4-Butandiol, 1,6-Hexandiol, 1,10-Decandiol, Glycerin oder Trimethylolpropan hergestellt werden können.

Eine weitere Gruppe der erfindungsgemäß einzusetzenden Polyole sind die Polyester auf der Basis von ε-Caprolacton, auch "Polycaprolactone" genannt.

Es können aber auch Polyesterpolyole oleochemischer Herkunft verwendet werden. Derartige Polyesterpolyole können beispielsweise durch vollständige Ringöffnung von epoxidierten Triglyceriden eines wenigstens teilweise olefinisch ungesättigte Fettsäure-enthaltenden Fettgemisches mit einem oder mehreren Alkoholen mit 1 bis 12 C-Atomen und anschließender partieller Umesterung der Triglycerid-Derivate zu Alkylesterpolyolen mit 1 bis 12 C-Atomen im Alkylrest hergestellt werden (siehe z. B. DE-A-36 26 223). Weitere geeignete Polyole sind Polycarbonat-polyole und Dimerdiole (Fa. Henkel) sowie Rizinusöl und dessen Derivate. Auch die Hydroxy-funktionellen Polybutadiene, wie sie z. B. unter dem Handelsnamen "Poly-bd" erhältlich sind, können für die erfindungsgemäßen Zusammensetzungen als Polyole eingesetzt werden.

Weiterhin können die in der EP-A-205846 offenbarten niedermolekularen hydroxyfunktionellen (Meth) Acrylatpolymeren als Polyole eingesetzt werden.

Als Novolak-Harze bzw. Phenolharze können die allseits bekannten Kondensationsprodukte von Phenol und/oder Resorzin mit Formaldehyd Verwendung finden. Weiterhin können hier die Co-Kondensate mit Terpenen, d. h. die Terphenolharze eingesetzt werden.

Die erfindungsgemäßen Klebstoff-Zusammensetzungen enthalten grundsätzlich mindestens eine Di- oder Polysulfidbindungen enthaltende Aufbaukomponente der allgemeinen Formel I und eine Aufbaukomponente der allgemeinen Formel II. Dabei müssen selbstverständlich die beiden Komponenten aufeinander abgestimmt sein. Beispiele für sinnvolle Kombinationen sind:

Funktionalität Komponente I	Funktionalität Komponente II
Hydroxy, Epoxy, Amino	Isocyanat, Epoxy
Epoxy	Phenol, Novolak, Amin
Acrylat, Methacrylat	ungesättigte Polyester, Acrylat, Methacrylat
Mercapto	Epoxy, Isocyanat, Mercapto
Alkoxysilyl	Alkoxysilyl

Eine geeignete Kombination der Aufbaukomponenten gemäß Formel I und Formel II kann jedoch auch in Bindemitteln auf der Basis von Flüssigkautschuken sein, die mit Schwefel und/oder Schwefelverbindungen enthaltenen Vulkanisationssystemen polymerisiert werden. Konkrete Beispiele für die hierzu einsetzenden Flüssigkautschuke sind in der WO 96/36660 auf Seite 5 genannt. Hierfür geeignete schwefelhaltige Vulkanisationsmittel sind auf der Seite 6 letzter Absatz bis Seite 7 erster Absatz der WO 96/36660 offenbart.

Die erfindungsgemäßen Klebstoffzusammensetzungen können zusätzlich Weichmacher enthalten. Grundsätzlich lassen sich hierbei alle gängigen Weichmacher einsetzen, beispielhaft genannt seien die C<sub>6</sub>-C<sub>14</sub>-Dialkylester der Phthalsäure, Alkyl-Benzylester der Phthalsäure, Benzoate von di- oder trifunktionellen Polyolen wie z. B. das Dipropylenglycoldibenzoat, Alkylsulfonsäureester des Phenols und Cresols, Arylphosphate, Alkylphosphate, C<sub>6</sub>-C<sub>14</sub>-Diester von aliphatischen C<sub>4</sub>-C<sub>10</sub>-Dicarbonsäuren und/oder Polymerweichmachern auf der Basis von Diolen und Dicarbonsäuren sowie deren Mischungen.

Weiterhin können die Klebstoffzusammensetzungen Füllstoffe in Mengen zwischen 5 und 60 Gew.-% enthalten. Beispiele für geeignete Füllstoffe sind Kalkstein-Mehl, natürliche, gemahlene Kreiden (Calciumcarbonate oder Calcium-Magnesium-Carbonate), gefällte Kreiden, Schwerspart, Talk, Glimmer, Tone, Ruß sowie Farbpigmente wie z. B. Titandioxid oder Eisenoxide.

Weiterhin können die erfindungsgemäßen Klebstoffe weitere Hilfs- und Zusatzmittel enthalten wie z. B. Alterungsmittel und Stabilisatoren, Rheologie-Hilfsmittel wie z. B. pyrogene Kieselsäuren, Bentonite, Rizinusöl-Derivate, sowie Katalysatoren und Beschleuniger und ggf. klebrigmachende Harze.

Zum Lösen der Klebeverbindung gemäß vorliegender Erfindung enthalten die Klebstoffzusammensetzungen bei normalem Gebrauch inerte Spaltungsagenzien. Diese Spaltungsagenzien haben die Aufgabe, die in das Polymersystem eingebauten Di- oder Polysulfid-Bindungen wieder zu spalten. Diese Spaltungsagenzien sind entweder Mercaptoverbindungen ggf. unter Zusatz von anorganischen oder organischen basischen Verbindungen oder anderen Beschleunigern oder es sind Reduktionsmittel zur reduktiven Spaltung der S-S-Bindungen des Klebstoffs. Gegebenenfalls können die Spaltungsagenzien auch eine katalytische oder thermische Spaltung der S-S-Bindungen des Klebstoffs bewirken. Gegebenenfalls können die Spaltungsagenzien noch weitere Hilfsmittel, insbesondere Quellmittel enthalten, wobei letztere durch Anquellen der vernetzten Polymermatrix des Klebstoffsystems den Angriff der Spaltungsagenzien erleichtern und beschleunigen.

Konkrete Beispiele für die erfindungsgemäß als Spaltungsreagenz einzusetzenden Mercaptoverbindungen sind 2-Mercaptobenzoessäure (Thiosalicylsäure), 2-Mercaptobenzothiazol (2-Benzothiazolthiol), 2-Mercaptobenzoxazol (2-Benzoxazolthiol), DL-Mercaptobornsteinsäure (Thioaepfelsäure), Mercaptobrenztraubensäure Natriumsalz, 2-Mercapto-4(3H)-chinazolin, 2-Mercaptochinolin (2-Chinolinthiol), 2-Mercapto-1-methylimidazol, 5-Mercapto-1-methyl-1H-tetrazol, 2-Mercapto-5-methyl-1,3,4-thiadiazol, 3-Mercapto-4-methyl-4H-1,2,4-triazol, 4-Mercaptophenol, 5-Mercapto-3-phenyl-1,2,4-oxadiazol, 5-Mercapto-1-phenyl-1H-tetrazol, N-(2-Mercaptopropionyl)-glycin, 2-Mercapto-2-thiazolin, Triphenylmethylmercaptan, 4-Toluolthiol, 2-Mercaptopyrimidin, 3-Mercapto-1,2,4-triazol, 2-Mercapto-4-methylpyrimidin Hydrochlorid, 2-Mercaptobenzimidazol. Konkrete Beispiele für die Reduktionsmittel sind bei Raumtemperatur feste Trialkyl- oder Triarylphosphine.

Es gibt verschiedene Wege, die Spaltungsreagenzien bei Raumtemperatur so inert zu gestalten, daß sie eine Verklebung ermöglichen, die bei allen Gebrauchstemperaturen eine stabile Bindung bewerkstelligt und erst bei Bedarf aktiviert wird. Eine Möglichkeit ist die Wahl kristalliner Spaltungsreagenzien der vorgenannten Art, die einen ausreichend hohen Schmelzpunkt haben, so daß sie bei normalen Gebrauchstemperaturen in weitgehend inerte Form in der Klebstoffmatrix dispergiert sind. Eine weitere Möglichkeit ist die Verkapselung der Spaltreagenzien, dies kann auf zwei Wegen geschehen, zum einen kann das Spaltreagenz mit einem separaten inerten Kapselmaterial umhüllt sein, zum anderen kann durch eine in-situ-Oberflächenreaktion eine Verkapselung der Spaltreagenzien-Partikel erfolgen. Eine weitere Möglichkeit ist die Verwendung von chemisch blockierten Spaltreagenzien sowie die Verwendung von topologisch oder sterisch inakti-

vierten Spaltungsreagenzien oder die Verwendung von kinetisch gehemmten Spaltungsreagenzien.

Die Aktivierung der inerten Spaltungsreagenzien in der Klebstoffmatrix kann durch Schmelzen, Konformationsänderung, Reaktionsbeschleunigung (insbesondere bei Katalysatoren), Auslösung chemischer Reaktionen durch Abspaltung von Schutzgruppen oder durch in-situ-Erzeugung von aktiven Zentren oder durch Kapselsprengungen (Aufsprengung der inerten Außenschichten der Mikroverkapselung oder durch Aufsprengung des Kapselkerns) oder durch Aktivierung von bei Gebrauchstemperatur inerten Spaltungskatalysatoren bewirkt werden.

Dabei können eine Reihe von Verfahren zur Aktivierung der inerten Spaltungsreagenzien oder inerten Katalysatoren eingesetzt werden. Es kann zum einen die verklebte Stelle erhitzt werden, zum anderen durch Einwirkung von Wärmestrahlung (IR-Strahlung), durch Einwirkung von Partikelstrahlung, durch Durchleiten von elektrischem Strom (bei elektrisch leitfähigen Klebstoffformulierungen) sowie durch Einwirken von elektrischen und insbesondere elektromagnetischen Feldern eine Aktivierung der Spaltungsreagenzien bewirkt werden. Bei der Auswahl von elektromagnetischen oder magnetischen Feldern stehen eine Vielzahl von sogenannten IMS-Frequenzen zur Verfügung (industrial, medical, science-Anwendungen). Unter elektromagnetischen Strahlungen sind zum einen die zugelassenen IMS-Frequenzen im Radiofrequenzbereich bis etwa 100 MHz zu verstehen als auch die Mikrowellen, die üblicherweise im Bereich zwischen 0,9 und 10 GHz liegen. Ein weiteres Verfahren zur Aktivierung der inerten Spaltungsreagenzien oder inerten Katalysatoren liegt in der Verwendung von Ultraschall-Energie oder der Verwendung von energetischen Druck- oder Stoßwellen.

Eine weitere erfindungsgemäße Ausgestaltung der lösbaren Klebeverbindungen besteht darin, daß zum Fügen normale Klebstoffe gemäß Stand der Technik verwendet werden und daß ein spaltbarer Primer eingesetzt wird. Bekanntlich müssen bei vielen Verklebungen auch heute noch haftungsfördernde Voranstriche (Primer) auf mindestens einem der zu fügenden Substrate aufgebracht werden. Im Sinne dieser Erfindung kann der Primer eine Aufbaukomponente gemäß der allgemeinen Formel I enthalten. Auf diese Weise kann nach gleichem Wirkungsprinzip wie oben geschildert mit den erfindungsgemäßen Spaltungsreagenzien die Primerschicht gespalten werden, so daß die gefügten Teile im Sinne dieser Erfindung gelöst werden, ohne daß der Klebstoff als solcher der Spaltungsreaktion unterworfen wird.

Anhand der nachfolgenden Ausführungsbeispiele soll die Erfindung näher erläutert werden, wobei die Auswahl der Beispiele keine Beschränkung des Umfangs des Erfindungsgegenstandes darstellt. Sofern nicht anders angegeben, sind alle Mengenangaben in den nachfolgenden Beispielen Gewichtsprozent bezogen auf die gesamte Zusammensetzung bzw. Gewichtsteile.

#### Beispiele

Für die Verklebungs- und Entklebungsversuche wurden Stahlbleche nach DIN 1541/ST 1206 mit den Abmessungen 1,5 mm × 25 mm × 100 mm (gesandstrahlt oder geschmirgelt, mit Dichlormethan entfettet) verwendet. Als Klebstoff wurde ein 2-Komponentenisoliertglas-Klebstoff auf Basis eines Polysulfidpolymers verwendet, Terostat 998 R der Firma Henkel Teroson. Vor der Applikation wurden wechselnde Mengen eines feinpulvrigen Spaltungsreagenzes in diesen Klebstoff eindispersiert.

Der Klebstoff wurde so auf die Stahlbleche aufgetragen, daß eine Klebefuge von 20 × 25 × 0,5 mm zwischen den überlappenden Stahlblechen entstand. Nach dem Aushärten gemäß Herstellerangaben und einer Lagerung für 7 Tage bei Raumtemperatur wurden die Entklebungseigenschaften getestet. Dazu wurden die verklebten Bleche einseitig in eine Stativ in einen Ofen eingespannt und jeweils mit 1,3 kg Gewicht belastet. Es wurde die Temperatur und die Zeit bestimmt, bei der der verklebte Prüfkörper auseinander fällt. Dabei wurde zwischen Raumtemperatur und 50°C mit einer Aufheizrate von 2,5°C/min erwärmt, zwischen 50°C und 200°C betrug die Aufheizrate 0,5°C/min.

#### Vergleichsbeispiel 1 und Beispiele 1 bis 4

Verwendetes Spaltungsreagenz: 2-Mercapto-2-Thiazolin, die Versuchsergebnisse sind in der Tabelle 1 zusammengefaßt:

Tabelle 1

Beispiel	Füllgrad %	Temperatur °C	Zeit h
Vergleich 1	0	> 200	>>5
1	1	141	3
2	2,5	109	1,96
3	5	84	1,13
4	10	48	0,15

Im Vergleichsbeispiel ohne Spaltungsreagenz im Klebstoff zeigt sich, daß die Prüfkörper auch bei Temperaturen oberhalb von 200°C nach mehr als 5 Tagen noch intakt sind, d. h. es hat keine Spaltung der Klebeverbindung stattgefunden. Wie aus den Beispielen 1 bis 4 deutlich hervorgeht, kann mit der Menge des eindispersierten Spaltnmittels sowohl die Spaltungstemperatur als auch die benötigte Zeit zur Spaltung der Verklebung gesteuert werden. Beide fallen deutlich mit steigender Menge an Spaltungsreagenz.

Zum Nachweis, daß eine bestimmte Mindesttemperatur eingehalten werden muß als "Triggertemperatur" zur Spaltung der Verklebung wurde mit folgenden Versuchen gezeigt:

Verklebungen mit 1% Spaltreagenz wurden bei konstanter Temperatur von 80°C unter Belastung mit 1,3 kg gelagert, auch nach 10 Tagen Dauerlast war kein Bruch der Verklebung zu beobachten. Auch bei Verklebungen, die 2,5% an Spaltreagenz enthielten, war die Verklebung nach 5½ Tagen immer noch intakt.

Zur Bestimmung der "Triggertemperatur" wurden die Prüfkörper, die bereits 10 Tage lang bei 80°C ohne Klebungsbruch belastet worden waren, bei 100°C und 120°C unter Last weiter gelagert. Auch hier erfolgte kein Bruch der Verklebung. Anschließend wurden die gleichen Prüfkörper bei 145°C unter Last gelagert, nach 2,5 Std. erfolgte ein Bruch der Verklebung. D. h. ein verklebter Prüfkörper, bei dem der Klebstoff 1 Gew.-% dieses Spaltreagenzes enthielt, mußte bei einer Belastung mit 1,3 kg 2½ Std. auf 145°C erwärmt werden, um die Klebstoffmatrix so zu spalten, daß die Verklebung brach.

In gleicher Weise wie in den Beispielen 1 bis 4 wurde als Spaltreagenz 2-Mercaptobenzoxazol als Spaltungsreagenz in die Klebstoff-Formulierung eindispersiert.

Die Versuchsergebnisse sind in der Tabelle 2 zusammengefaßt:

Tabelle 2

Beispiel	Temperatur °C	Füllgrad %
5	108	1
6	100	2,5
7	81	5

Auch hier wird deutlich, daß die Triggertemperatur für die Spaltung der Verklebung vom Mengenanteil des Spaltungsreagenzes in der Klebstoff-Formulierung abhängt.

In den nachfolgenden Beispielen wurden wechselnde Mengen eines inerten kristallinen Stoffes (Natriumchlorid) in den Klebstoffterostat 998 R eindispersiert und beobachtet, ob durch die Zugabe dieses Füllstoffes die thermische Beständigkeit der Verklebung beeinflusst wird. Die Ergebnisse sind in Tabelle 3 zusammengefaßt:

Tabelle 3

	Temperatur °C	Füllgrad %
Vergleich 1	ca. 250	0
2	176	1
3	176,5	2,5
4	171	5

Hieraus wird deutlich, daß der Klebstoff ohne Eindispersierung von Fremdstoffen bis etwa 250°C beständig ist, Eindispersierung von steigenden Mengen eines inerten kristallinen Stoffes reduziert diese Temperaturbeständigkeit geringfügig bis auf etwa 170 bis 175°C. Dies zeigt deutlich, daß die erfindungsgemäße Zumischung der festen Spaltreagenzien in den Beispielen 1 bis 7 eine Reduzierung der Spalttemperatur für die Klebeverbindung durch Auslösen einer chemischen Spaltung des Klebeverbundes bewirkt, sowohl Spalttemperatur als auch die benötigte Zeit lassen sich in weiten Grenzen auf die jeweiligen Erfordernisse einstellen.

#### Patentansprüche

1. Klebstoff-Zusammensetzung auf der Basis von mindestens einem Di- oder Polysulfidbindungen enthaltenden Bindemittel zur Herstellung von Klebeverbindungen **dadurch gekennzeichnet**, daß die Klebeverbindung mit einem Spaltreagenz wieder getrennt werden kann, wobei das Spaltreagenz in der Klebstoff-Zusammensetzung in kristalliner, in verkapselter, chemisch blockierter, in topologisch oder sterisch inaktiver oder in kinetisch gehemmter, fein dispergierter Form vorliegt.

2. Klebstoff-Zusammensetzung gemäß Anspruch 1, **dadurch gekennzeichnet**, daß die Aufbaukomponenten des Bindemittels ausgewählt werden aus der Gruppe der Epoxidharz kombiniert mit Di- oder Polysulfid-Bindungen enthaltenden Di- oder Polymercaptanen, Di- oder Polythioalkanolen, Di- oder Polythiodicarbonsäuren oder Di- oder Polythiodi- oder Polyaminen oder deren Mischungen, Polyurethansystemen aufgebaut aus Monomeren oder Prepolymeren Di- oder Polyisocyanaten mit Di- oder Polythiodi- oder Polyaminen, Di- oder Polythio-Di- und/oder Polyole, flüssigen Polyenen (Flüssigkautschuk) mit Schwefel und/oder Schwefelverbindungen enthaltenden Vulkanisationssystemen.

3. Klebstoffzusammensetzung nach einem der vorhergehenden Ansprüche dadurch gekennzeichnet, daß das Spaltreagenz aus einer der folgenden Verbindungen ausgewählt wird:

2-Mercaptobenzoessäure (Thiosalicylsäure), 2-Mercaptobenzothiazol (2-Benzothiazolthiol), 2-Mercaptobenzoxazol (2-Benzoxazolthiol), DL-Mercaptobornsteinsäure (Thioapfelsäure), Mercaptobrenztraubensäure Natriumsalz, 2-Mercapto-4(3H)-chinazolin, 2-Mercaptochinolin (2-Chinolinthiol), 2-Mercapto-1-methylimidazol, 5-Mercapto-1-methyl-1H-tetrazol, 2-Mercapto-5-methyl-1,3,4-thiadiazol, 3-Mercapto-4-methyl-4H-1,2,4-triazol, 4-Mercapto-phenol, 5-Mercapto-3-phenyl-1,2,4-oxadiazol, 5-Mercapto-1-phenyl-1H-tetrazol, N-(2-Mercaptopropionyl)-glycin, 2-Mercapto-2-thiazolin, Triphenylmethylmercaptan, 4-Toluolthiol, 2-Mercaptopyrimidin, 3-Mercapto-1,2,4-triazol, 2-Mercapto-4-methylpyrimidin Hydrochlorid, 2-Mercaptobenzimidazol.

4. Verfahren zum Herstellen und Lösen von Klebeverbindungen gekennzeichnet durch die folgenden wesentlichen Verfahrensschritte

a) Fügen und Verbinden der Teile mit Hilfe einer Klebstoffzusammensetzung nach Anspruch 1 bis 3, wobei die Klebstoffzusammensetzung ggf. vor der Applikation aus zwei- oder mehr Komponenten gemischt wird

b) Aushärten des Klebstoffs bei Raumtemperatur oder durch Erwärmen,

c) Lösen der Klebeverbindung durch Aktivieren des in der Klebstoff-Matrix dispergierten, bei Gebrauchstemperatur der geklebten Teile inerten, Spaltungsreagenzes

d) gegebenenfalls gefolgt von mechanischer Belastung.

5. Verfahren nach Anspruch 4, dadurch gekennzeichnet, daß das inerte Spaltungsreagenz durch Schmelzen, Konformationsänderung, Abspaltung blockierender Schutzgruppen, Erzeugung aktiver Zentren, Sprengung von Verkapselungen oder katalytische Wirkung aktiviert wird.

6. Verfahren nach Anspruch 4 oder 5, dadurch gekennzeichnet, daß die Aktivierung durch Erhitzen (Wärmeleitung), Wärmestrahlung, Partikelstrahlung, Durchleitung elektrischen Stroms, elektrische oder elektromagnetische Felder, Ultraschall, Druck- oder Stoßwellen bewirkt wird.



### **Dissolvable Adhesives**

This invention relates to adhesive compositions based on binders which contain disulfide or polysulfide bonds and which are suitable for the production of dissolvable adhesive bonds. The present invention also relates to splitting reagents for dissolving adhesive bonds and to a process  
5 for forming and dissolving adhesive bonds.

In many branches of industry, particularly in the metal-processing industry, for example the motor industry, in the manufacture of utility vehicles and the associated supplier industries or even in the production of machines and domestic appliances and in the building industry, identical or  
10 different, metallic and non-metallic substrates are being increasingly joined together by adhesives or sealants. This method of joining structural components is increasingly replacing conventional joining techniques, such as rivetting, screwing or welding, because bonding/sealing offers a number of technological advantages. In contrast to traditional joining techniques,  
15 such as welding, rivetting, screwing, the problem of dissolving adhesive bonds and separating the bonded components has not yet been satisfactorily solved.

**EP-A-735121** describes an adhesive film section for a residue-free, damage-free and dissolvable adhesive bond consisting of a double-sided  
20 adhesive film with a grip tab projecting from the adhesive film at which the adhesive bond can be separated by pulling in the direction of its plane. However, this method can only be applied where the adhesive layer of the adhesive film is a contact adhesive. Unfortunately, adhesive bonds produced by this method have very poor tensile and peel strengths, with  
25 the result that this method can only be used to fix small articles, such as hooks and the like, in the home.

**DE-A-4230116** describes an adhesive composition containing a mixture of an aliphatic polyol with an aromatic dianhydride. This adhesive composition enables the adhesive bond to be dissolved in water/alkali systems, more specifically soda solutions or alkali metal hydroxides.

5 According to the document in question, these water/alkali-soluble adhesives are suitable for the efficient production of magnet components and other small parts, the adhesive only being used for temporary bonding during processing of the materials. Very similar adhesives are also known  
10 as labelling adhesives which enable the labels to be removed from beverage bottles and similar containers in aqueous or aqueous/alkaline medium.

**DE-A-4328108** describes an adhesive for floor coverings and a process for taking up the bonded floor coverings using microwave energy. To this end, the adhesive is said to be electrically conductive and  
15 softenable by a microwave unit. Solventless contact adhesives based on (aqueous) polymer dispersions containing copper powder or aluminium powder are specifically mentioned. According to the teaching of this document, the adhesive bond securing the pieces of floor covering can be dissolved by application of a microwave unit to soften the adhesive layer so  
20 that, after the layer of adhesive has softened, the pieces of floor covering can be manually removed.

**WO 94/12582** describes a contact adhesive based on a mixture of an aqueous polymer dispersion, an adhesive dissolved in an organic solvent, tackifiers and finishing agents. This contact adhesive has constant  
25 adhesive strength over a broad temperature range and enables the adhesive bonds to be mechanically separated. According to the document in question, the adhesive is suitable for bonding insulation and/or parts of decorative surfaces, for example insulating materials or plastic films.

**EP-A-521825** describes a dissolvable adhesive bond where the  
30 parts joined to one another are bonded by a strip of adhesive applied

between them. This strip of adhesive contains a flat thermoplastic separating element. When the adhesive bond is heated by electrical current or heat, this thermoplastic separating layer is softened so that the parts joined to one another can be mechanically separated. According to the document in question, these dissolvable adhesive bonds are suitable for direct glazing in car manufacture.

**DE-A-19526351** describes a dissolving gel for lacquers, paints and adhesives based on organic solvents containing additions of wetting agents, thickeners and other typical auxiliaries. The use of the gel as a remover in the stripping of two-component lacquers is mentioned as a specific application. Although it is stated that the mixtures in question may also be used for two-component adhesives, there is no specific reference to the dissolution of the adhesive bonds. Similarly, **WO 87/01724** describes a composition for removing hardened polysulfide sealants or coatings. In this case, an alkali metal or ammonium thiolate based on alkyl or phenyl thiolates is dissolved in a solvent or solvent mixture consisting of dimethyl formamide or dimethyl acetamide or a mixture thereof with aromatic solvents, such as toluene or xylene, and the resulting solution is applied to hardened polysulfide sealants or coating materials so that they may subsequently be removed from their substrates, such as aircraft tanks for example. Particulars of the dissolving of adhesive bonds are not disclosed.

**WO 97/00283** describes a process for regenerating cured or partly cured polysulfide and/or polymercaptan compositions. In this process, cured polysulfide materials are depolymerized in a solution of a depolymerizing agent based on vulcanization accelerators in a non-volatile liquid so that they may be re-used as part of a hardener component of two-component polysulfide and/or polymercaptan adhesives/sealants or coating materials. There are no references in the document in question to the dissolving of adhesive bonds by this method.

In an article entitled **"Reversible Crosslinking in Epoxy Resins"** published in **Journal of Applied Polymer Science**, **39**, 1429 to 1457 (1990), V.R. Sastri and G.C. Tesoro describe epoxy resins with various epoxy equivalents which are crosslinked with 4,4'-dithioaniline. The crosslinked resin is said to be ground into particles 600  $\mu\text{m}$  in size. The fine-particle powder obtained is then refluxed in a solution of diglyme, hydrochloric acid and tributyl phosphine until the ground resin has dissolved. Similar disclosures are made by the same authors in **US-A-4,882,399**. There is no specific reference in this article to dissolvable adhesive bonds...

The dissolvable adhesive bonds described in the prior-art literature cited above all have very narrow fields of application. In particular, there are no adhesive compositions which combine the ready and rapid dissolvability or simple removability of the adhesive bond with high bond strength and stability to outside influences.

Hitherto unpublished **PCT/EP98/04667** describes adhesives of which at least one structural component contains disulfide or polysulfide bonds and which can be redissolved after curing by applying solutions of splitting agents based on mercapto compounds. In this way, bonded parts can be chemically separated at the glue line. According to the teaching of this document, the splitting agent may also be added to the adhesive formulation in a form where it is inert at room temperature, in which case splitting can take place after activation of the reagent at elevated temperature. Actual embodiments of this inert form of the splitting agent are not mentioned. Although the use of solvent-containing splitting agents enables adhesive bonds to be redissolved, it is desirable to avoid the use of solvent-containing splitting agents because this procedure

- is very time-consuming on account of the diffusion-based contact time of the splitting agents and

- the handling of solvent-containing splitting agents should be avoided on environmental grounds.

Accordingly, the problem addressed by the present invention was to provide adhesive compositions which could be redissolved as required and where the use of externally applied solvent-containing splitting agents could be avoided.

The solution to this problem as provided by the invention is defined in the claims and lies essentially in the provision of adhesive compositions based on binders which contain at least one disulfide or polysulfide bond per molecule and which, in the adhesive composition, contain a splitting agent that is inert at room temperature or at the service temperature but, when suitably activated, is capable of breaking these disulfide or polysulfide bonds so that the joined parts can be separated.

In the context of the invention, the expression "inert at room temperature or at the service temperature" in relation to the splitting agent means that, although this splitting agent is dispersed in the adhesive matrix at room temperature or at the service temperature of the bonded unit, it is unable to break the disulfide or polysulfide bonds of the adhesive matrix at temperatures around that temperature. Instead, this breaking and hence dissolving of the adhesive bond is only supposed to occur after an initiating step, i.e. after activation of the splitting reagent.

The present invention also relates to a process for forming and dissolving adhesive bonds essentially comprising the following steps:

- Assembling and joining the parts with an adhesive composition of which the binder contains at least one structural component containing at least one disulfide or polysulfide bond per molecule. The adhesive composition may be a one-component system which the user can apply directly without having to mix components. However, the adhesive system may also consist of two or more components which are stored

separately from one another and which are only mixed together immediately before application.

- 5     • Curing the adhesive at room temperature, i.e. by reaction of the individual components with one another in the case of multicomponent systems or by reaction of the one-component system with atmospheric moisture and/or atmospheric oxygen. The adhesive may also be cured by heat, UV-light or electron beams. The particular curing process used is governed by the crosslinking mechanism of the components.
- 10    • The bond is dissolved by application of a splitting reagent dispersed in the adhesive mixture.
- 15    • The bond dissolving process may optionally be further accelerated by heating the bonded parts or the adhesive bond.

Separation of the bonded parts may optionally be further accelerated by subjecting the adhesive bond to a mechanical load.

20    Accordingly, a key constituent of the structural components of the binder according to the invention are compounds which contain at least one disulfide or polysulfide bond corresponding to the following general formula:



25    in which  $R^1$  and  $R^2$  are branched alkyl and/or aryl groups, i.e. in the most simple case a  $C_{2-8}$  alkylene group, or a difunctional aromatic radical such as, for example, 1,2-, 1,3- or 1,4-phenylene, diphenylene, naphthylene or similar aromatic radicals. X and Y independently of one another may  
30    represent any functional group capable of reacting, preferably primary or

secondary amino groups, hydroxyl groups, carboxyl groups. X and/or Y may also be mercapto groups, epoxy groups, isocyanate groups, alkoxysilyl groups or even olefinic double bonds. In the latter case, R<sup>1</sup> and/or R<sup>2</sup> may be replaced by a covalent bond. x is an integer of 2 to 8 and, in a particularly preferred embodiment, has a value of 2.

Examples of structural components corresponding to formula I which contain olefinic double bonds may be prepared as follows: in a first step, dithiodialcohols or dithiodiamines are reacted with diisocyanates to form isocyanate-terminated disulfide compounds, i.e. the diisocyanate component is used in more than the stoichiometric quantity in relation to the dithiodialcohol or dithiodiamine component. In a second step, these NCO-terminated disulfide compounds are reacted with hydroxyalkyl acrylates or hydroxyalkyl methacrylates, so that (meth)acrylate-terminated disulfide bonds are formed. Examples of suitable hydroxyalkyl (meth)acrylates are the corresponding ethyl, propyl or butyl compounds. The resulting (meth)acrylate-terminated disulfide compounds may be combined as usual with corresponding copolymerizable compounds and may be cured by a radical or ionic mechanism. Examples of these known copolymerizable compounds can be found in DE-C 19545123, column 5, lines 24 to 47. The comonomers mentioned there are an integral part of the present invention.

Similarly, epoxyfunctionalized disulfides or polysulfides can be produced from the NCO-terminated disulfide or polysulfide compounds by reaction with hydroxyfunctional epoxy compounds. Examples of such hydroxyfunctional epoxides are glycidol and the various glycidyl ethers of bisphenol A which generally carry free hydroxy groups.

Similarly, epoxyfunctionalized disulfide or polysulfide compounds can be obtained by reacting COOH-terminated disulfide or polysulfide compounds with difunctional or polyfunctional epoxy compounds.

The corresponding alkoxysilane-terminated products can be produced from the NCO-terminated disulfide or polysulfide compounds by reaction with aminofunctional alkoxysilanes.

Particularly preferred structural components corresponding to  
5 formula I are cystamine, dithiodiethanol and dithiodipropionic acid.

Another structural component of the adhesive composition according to the invention may consist of one or more compounds corresponding to the following general formula:



where X and Y may be as defined above and  $R^3$  is an at least difunctional organic radical. The components corresponding to formula II are normally so-called prepolymer compounds with a molecular weight in the range from  
15 300 to 20,000 and preferably in the range from 700 to 10,000.

Particularly preferred components corresponding to formula II are epoxy resins, isocyanate-containing polyurethane prepolymers, novolak resins, phenolic resins or unsaturated polyesters. However, the components corresponding to formula II may also be replaced by the  
20 copolymerizable olefinically unsaturated compounds mentioned above.

Suitable epoxy resins are various polyglycidyl ethers of polyols, such as ethylene glycol, diethylene glycol, triethylene glycol, 1,2-propylene glycol, pentane-1,5-diol, hexane-1,2,6-triol, glycerol, 2,2-bis-(4-hydroxycyclohexyl)-propane and polyalkylene glycols, such as  
25 polypropylene glycol. Other suitable epoxy resins are the polyglycidyl esters of aliphatic or aromatic polycarboxylic acids, such as oxalic acid, succinic acid, glutaric acid, terephthalic acid, 2,6-naphthalene dicarboxylic acid and dimer fatty acid. Other suitable epoxy compounds are the polyglycidyl ethers of polyphenols, such as bisphenol A, 1,1-bis-(4-  
30 hydroxyphenyl)-ethane, 1,1-bis-(4-hydroxyphenyl)-isobutane, 1,5-



5 dihydroxynaphthalene and novolak resins. Preferred epoxy compounds include relatively high molecular weight resins, such as the chain-extended diglycidyl ethers of bisphenol A, diglycidyl ethers of dimer fatty acid-extended bisphenol A and bisphenol A glycidyl ether-terminated polyether polyurethanes. The adducts of epoxy resins with carboxy-, amino- and/or hydroxyfunctional nitrile rubbers (Hycar types) may also be used as the epoxy component.

10 The isocyanate-containing polyurethane prepolymers are made up of aromatic, cycloaliphatic or aliphatic polyisocyanates and diols and/or polyols. The following are examples of suitable aromatic polyisocyanates: any isomers of toluene diisocyanate (TDI) either in the form of pure isomers or in the form of mixtures of several isomers, naphthalene-1,5-diisocyanate, diphenylmethane-4,4'-diisocyanate (MDI), diphenylmethane-2,4'-diisocyanate and mixtures of 4,4'-diphenylmethane 15 diisocyanate with the 2,4'-isomer or mixtures thereof with oligomers of higher functionality (so-called crude MDI). Examples of suitable cycloaliphatic polyisocyanates are the hydrogenation products of the above-mentioned aromatic diisocyanates, for example 4,4'-dicyclohexylmethane diisocyanate ( $H_{12}$ MDI), 1-isocyanatomethyl-3- 20 isocyanato-1,5,5-trimethyl cyclohexane (isophorone diisocyanate, IPDI), cyclohexane-1,4-diisocyanate, hydrogenated xylylene diisocyanate ( $H_6$ XDI), m- or p-tetramethyl xylene diisocyanate (m-TMXDI, p-TMXDI) and dimer fatty acid diisocyanate. Examples of aliphatic polyisocyanates are hexane-1,6-diisocyanate (HDI), 1,6-diisocyanato-2,2,4-trimethyl hexane, 25 1,6-diisocyanato-2,4,4-trimethyl hexane, butane-1,4-diisocyanate and 1,12-dodecane diisocyanate ( $C_{12}$ DI).

30 Preferred diols and/or polyols are liquid polyhydroxy compounds containing two or three hydroxyl groups per molecule, for example difunctional and/or trifunctional polypropylene glycols with molecular weights in the range from 200 to 6,000 and preferably in the range from 400 to 3,000.

Statistical and/or block copolymers of ethylene oxide and propylene oxide may also be used. Another group of preferred polyethers are the polytetramethylene glycols which are obtained, for example, by the acid polymerization of tetrahydrofuran, the molecular weights of the polytetramethylene glycols being in the range from 200 to 6,000 and preferably in the range from 400 to 4,000.

Other suitable polyols are liquid polyesters which may be obtained by condensation of dicarboxylic or tricarboxylic acids, for example adipic acid, sebacic acid, glutaric acid, azelaic acid, hexahydrophthalic acid or phthalic acid, with low molecular weight diols or triols, for example ethylene glycol, propylene glycol, diethylene glycol, triethylene glycol, dipropylene glycol, butane-1,4-diol, hexane-1,6-diol, decane-1,10-diol, glycerol or trimethylol propane.

Another group of polyols which may be used in accordance with the invention are polyesters based on  $\epsilon$ -caprolactone which are also known as "polycaprolactones".

However, polyester polyols of oleochemical origin may also be used. Oleochemical polyester polyols may be obtained, for example, by complete ring opening of epoxidized triglycerides of a fatty acid mixture containing at least partly olefinically unsaturated fatty acids with one or more alcohols containing 1 to 12 carbon atoms and subsequent partial transesterification of the triglyceride derivatives to form alkyl ester polyols containing 1 to 12 carbon atoms in the alkyl group (see, for example, **DE-A-3626223**). Other suitable polyols are polycarbonate polyols and dimer diols (Henkel KGaA) and castor oil and its derivatives. Hydroxyfunctional polybutadienes of the type commercially available, for example, as "poly-bd" may also be used as polyols for the compositions according to the invention.

In addition, the low molecular weight hydroxyfunctional (meth)acrylate polymers disclosed in **EP-A-205846** may be used as polyols.

Suitable novolak resins or phenolic resins are the universally known condensation products of phenol and/or resorcinol with formaldehyde. The co-condensates with terpenes, i.e. the terpene/phenol resins, may also be used.

- 5 Basically, the adhesive compositions according to the invention contain at least one structural component of general formula I containing disulfide or polysulfide bonds and at least one structural component corresponding to general formula II. The two components must of course be compatible with one another. The following are examples of useful combinations:
- 10

Functionality component I	Functionality component II
Hydroxy, epoxy, amino	Isocyanate, epoxy
Epoxy	Phenol, novolak, amine
Acrylate, methacrylate	Unsaturated polyester, acrylate, methacrylate
Mercapto	Epoxy, isocyanate, mercapto
Alkoxysilyl	Alkoxysilyl

- However, a suitable combination of the structural components corresponding to formulae I and II may also lie in binders based on liquid rubbers polymerized with vulcanization systems containing sulfur and/or sulfur compounds. Actual examples of the liquid rubbers used for this purpose are given on page 5 of **WO 96/36660**. Sulfur-containing vulcanizing agents suitable for this purpose are disclosed on page 6, last paragraph to page 7, first paragraph of WO 96/36660.
- 15

- 20 The adhesive compositions according to the invention may additionally contain plasticizers. Basically, any conventional plasticizers

may be used, including for example the C<sub>6-14</sub> dialkyl esters of phthalic acid, alkylbenzyl esters of phthalic acid, benzoates of difunctional or trifunctional polyols such as, for example, dipropylene glycol dibenzoate, alkyl sulfonic acid esters of phenol and cresol, aryl phosphates, alkyl phosphates, C<sub>6-14</sub> diesters of aliphatic C<sub>4-10</sub> dicarboxylic acids and/or polymer plasticizers based on diols and dicarboxylic acids and mixtures thereof.

The adhesive compositions may also contain fillers in quantities of 5 to 60% by weight. Examples of suitable fillers are limestone powder, natural ground chalks (calcium carbonates or calcium magnesium carbonates), precipitated chalks, heavy spar, talcum, mica, clays, carbon black and pigments, for example titanium dioxide or iron oxides.

The adhesives according to the invention may additionally contain other auxiliaries and additives, for example antiagers and stabilizers, flow aids, such as pyrogenic silicas, bentones, castor oil derivatives, and catalysts, accelerators and optionally tackifying resins.

According to the invention, the adhesive compositions contain splitting agents which are inert in normal use to dissolve the adhesive bond. The function of the splitting agents is to break the disulfide or polysulfide bonds incorporated in the polymer system. The splitting agents are either mercapto compounds, optionally with additions of inorganic or organic basic compounds or other accelerators, or reducing agents for reductive cleavage of the S-S bonds of the adhesive. The splitting agents may optionally contain other auxiliaries, more particularly swelling agents which facilitate and accelerate the action of the splitting agents by softening the crosslinked polymer matrix of the adhesive system.

Actual examples of the mercapto compounds suitable for use as splitting reagent in accordance with the invention are 2-mercaptobenzoic acid (thiosalicylic acid), 2-mercaptobenzothiazole (2-benzothiazole thiol), 2-mercaptobenzoxazole (2-benzoxazole thiol), D,L-mercaptosuccinic acid (thiomalic acid), mercaptopyruvic acid sodium salt, 2-mercapto-4(3H)-

quinazoline, 2-mercaptoquinoline (2-quinoline thiol), 2-mercapto-1-methyl imidazole, 5-mercapto-1-methyl-1H-tetrazole, 2-mercapto-5-methyl-1,3,4-thiadiazole, 3-mercapto-4-methyl-4H-1,2,4-triazole, 4-mercaptophenol, 5-mercapto-3-phenyl-1,2,4-oxadiazole, 5-mercapto-1-phenyl-1H-tetrazole, N-  
5 (2-mercaptopropionyl)-glycine, 2-mercapto-2-thiazoline, triphenyl methyl mercaptan, 4-toluene thiol, 2-mercaptopyrimidine, 3-mercapto-1,2,4-triazole, 2-mercapto-4-methyl pyrimidine hydrochloride, 2-mercaptobenzimidazole. Actual examples of the reducing agents are trialkyl or triaryl phosphines solid at room temperature.

10        There are various ways of making the splitting reagents inert at room temperature so that they allow a bond to be established which is stable at all service temperatures and which is only activated as required. One possibility is to select crystalline splitting reagents of the above-mentioned type which have a sufficiently high melting point so that they are dispersed  
15 in largely inert form in the adhesive matrix at normal service temperatures. Another possibility is to encapsulate the splitting reagents which can be done in two ways. On the one hand, the splitting reagent may be encapsulated in a separate inert capsule material; on the other hand, the particles of splitting reagent may be encapsulated by an in situ surface  
20 reaction. Another possibility is to use chemically blocked splitting reagents and to use topologically or sterically inactivated splitting reagents or to use kinetically inhibited splitting reagents.

      The inert splitting reagents may be activated in the adhesive matrix by melting, a change of conformation, reaction acceleration (especially in  
25 the case of catalysts), initiation of chemical reactions by removal of protective groups or by in situ production of active centers or by capsule bursting (bursting of the inert outer layers of the microencapsulation or by bursting of the capsule core) or by activation of splitting catalysts inert at the service temperature.

Various processes may be used to activate the inert splitting reagents or inert catalysts. On the one hand, the bond may be heated; on the other hand, the splitting reagents may be activated by exposure to thermal radiation (IR radiation), by exposure to particle radiation, by passage of an electrical current (in the case of electrically conductive adhesive formations) and by exposure to electrical and especially electromagnetic fields. Where electromagnetic or magnetic fields are selected, various so-called IMS frequencies are available (industrial, medical, science applications). Electromagnetic radiation is understood to be, on the one hand, the permitted IMS frequencies in the radiofrequency range up to about 100 MHz and, on the other hand, microwaves which are normally in the 0.9 to 10 GHz range. Another method of activating the inert splitting reagents or inert catalysts is to use ultrasonic energy or high-energy pressure or shock waves.

Another embodiment of the dissolvable adhesive bond according to the invention is characterized in that normal prior-art adhesives are used for assembly and in that a dissolvable primer is used. It is well known that, in many adhesive bonds, adhesion-promoting primers still have to be applied to at least one of the substrates to be joined. According to the invention, the primer may contain a structural component corresponding to general formula I. In this way, the primer layer can be dissolved by the splitting agents according to the invention on the same action principle as described above, so that the joined parts are separated in accordance with the invention without the adhesive as such being subjected to the splitting reaction.

The following Examples are intended to illustrate the invention without limiting its scope in any way. In the Examples, all quantities are percentages by weight, based on the composition as a whole, or parts by weight.

**Examples**

DIN 1541/ST 1206 steel plates measuring 1.5 mm x 25 mm x 100 mm (sand-blasted or rubbed with emery cloth, degreased with dichloromethane) were used for the bonding and debonding tests. The adhesive used was a two-component insulating glass adhesive based on a polysulfide polymer (Terostat 998 R of Henkel Teroson). Before application, varying amounts of a finely powdered splitting reagent were dispersed in the adhesive.

The adhesive was applied to the steel plates in such a way that a 20 x 25 x 0.5 mm glue line was formed between the overlapping steel plates. After curing to the manufacturer's instructions and storage for 7 days at room temperature, the debonding properties were tested. To this end, the bonded plates were clamped at one end in a stand and placed in a oven and a 1.3 kg weight was attached. The temperature and time at which the bonded test specimen separated were determined. The test specimen was heated from room temperature to 50°C at a rate of 2.5°C/minute; between 50°C and 200°C, the heating rate was 0.5°C/minute.

Comparison Example 1 and Examples 1 to 4:

Splitting reagent used: 2-mercapto-2-thiazoline. The test results are set out in Table 1:

**Table 1.**

Example	Filling level %	Temperature °C	Time h
Comparison 1	0	> 200	>> 5
1	1	141	3
2	2.5	109	1.96
3	5	84	1.13
4	10	48	0.15

In the Comparison Example with no splitting reagent in the adhesive, it can be seen that the test specimens are still in tact after more than 5 days, even at temperatures above 200°C, i.e. the adhesive bond had not been broken. As can clearly be seen from Examples 1 to 4, both the splitting temperature and the time required to break the bond can be controlled through the quantity of splitting agent dispersed in the adhesive. Both decrease distinctly with increasing quantity of splitting agent.

The following tests were carried out to show that a certain minimum temperature must be maintained as the "trigger temperature" to break the bond:

Adhesive bonds containing 1% of splitting agent were stored at a constant 80°C under a load of 1.3 kg. Even after 10 days under that load, the bond showed no sign of breaking. Even bonds containing 2.5% of splitting agent were in tact after 5 and a half days.

To determine the trigger temperature, the test specimens which had already been loaded for 10 days at 80°C without breaking were stored under load at 100°C and 120°C. Again, the bond did not break. The same test specimens were then stored under load at 145°C. The bond broke after 2.5 hours. In other words, a bonded test specimen where the adhesive contained 1% by weight of the splitting reagent had to be heated for 2.5 hours at 145°C under a load of 1.3 kg in order to split the adhesive matrix so that the bond broke.

In the same way as in Examples 1 to 4, 2-mercaptobenzoxazole was dispersed as splitting reagent in the adhesive formulation.

The test results are set out in Table 2:



**Table 2.**

Example	Temperature °C	Filling level %
5	108	1
6	100	2.5
7	81	5

In this case, too, it can be seen that the trigger temperature for breaking the bond depends on the amount of splitting agent in the adhesive formulation.

In the following Examples, varying amounts of an inert crystalline substance (sodium chloride) were dispersed in the adhesive Terostat 998 R and the bonds were observed to determine whether their heat resistance was affected by the addition of this filler. The results are set out in Table 3:

**Table 3.**

	Temperature °C	Filling level %
Comparison 1	ca. 250	0
2	176	1
3	176.5	2.5
4	171	5

It can be seen that the adhesive is stable to about 250°C without the dispersion of foreign substances. The dispersion in the adhesive of increasing amounts of an inert crystalline substance reduces this heat resistance slightly to about 170 to 175°C. This clearly shows that the incorporation of the solid splitting agents in accordance with the invention in Examples 1 to 7 reduces the temperature at which the adhesive bond

breaks by initiating chemical separation of the bond. Both the separation temperature and the time required can be adjusted within wide limits to meet particular requirements.

**CLAIMS**

1. An adhesive composition based on at least one binder containing disulfide or polysulfide bonds for forming adhesive bonds, characterized in that the adhesive bond can be broken with a splitting reagent, the splitting  
5 reagent being dispersed in the adhesive composition in crystalline, encapsulated, chemically blocked, topologically or sterically inactivated or kinetically inhibited, finely dispersed form.
2. An adhesive composition as claimed in claim 1, characterized in that the structural components of the binder are selected from the group of  
10 epoxy resins combined with disulfide/polysulfide bond-containing di- or polymercaptans, di- or polythioalkanols, di- or polythiodicarboxylic acids or di- or polythiodi- or polyamines or mixtures thereof, polyurethane systems made up of monomers or prepolymers, di- or polyisocyanates with di- or polythiodi- or polyamines, di- or polythio-di- and/or polyols, liquid polyenes  
15 (liquid rubber) with vulcanization systems containing sulfur and/or sulfur compounds.
3. A splitting agent for dissolving adhesive bonds based on the adhesives claimed in either of the preceding claims, characterized in that the splitting reagent is selected from one of the following compounds: 2-  
20 mercaptobenzoic acid (thiosalicylic acid), 2-mercaptobenzothiazole (2-benzothiazole thiol), 2-mercaptobenzoxazole (2-benzoxazole thiol), D,L-mercaptopyruvic acid (thiomalic acid), mercaptopyruvic acid sodium salt, 2-mercapto-4(3H)-quinazoline, 2-mercaptoquinoline (2-quinoline thiol), 2-mercapto-1-methyl imidazole, 5-mercapto-1-methyl-1H-tetrazole, 2-  
25 mercapto-5-methyl-1,3,4-thiadiazole, 3-mercapto-4-methyl-4H-1,2,4-triazole, 4-mercaptophenol, 5-mercapto-3-phenyl-1,2,4-oxadiazole, 5-mercapto-1-phenyl-1H-tetrazole, N-(2-mercaptopropionyl)-glycine, 2-mercapto-2-thiazoline, triphenyl methyl mercaptan, 4-toluene thiol, 2-mercaptopyrimidine, 3-mercapto-1,2,4-triazole, 2-mercapto-4-methyl  
30 pyrimidine hydrochloride, 2-mercaptobenzimidazole.

4. A process for forming and dissolving adhesive bonds essentially comprising the following steps:

- 5 a) assembling and joining the parts with the adhesive composition claimed in claims 1 to 3, the adhesive composition optionally being mixed from two or more components before application,
- b) curing the adhesive at room temperature or by heating,
- c) dissolving the adhesive bond by activating the splitting reagent dispersed in the adhesive matrix, the splitting reagent being inert at the  
10 service temperature of the bonded parts,
- d) optionally followed by mechanical stressing.

5. A process as claimed in claim 4, characterized in that the inert splitting reagent is activated by melting, a change of conformation, removal  
15 of blocking protective groups, production of active centers, bursting of encapsulations or by catalytic action.

6. A process as claimed in claim 4 or 5, characterized in that activation is achieved by heating (thermal conduction), thermal radiation, particle  
radiation, passage of an electrical current, electrical or electromagnetic  
20 fields, ultrasound, pressure or shock waves.